

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2000-182766

(43)Date of publication of application : 30.06.2000

(51)Int.Cl. H05B 33/10  
H05B 33/04  
H05B 33/14

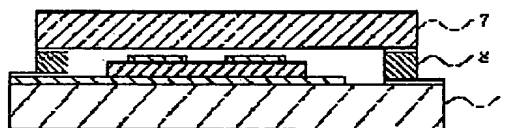
(21)Application number : 10-358214 (71)Applicant : NEC CORP

(22)Date of filing : 16.12.1998 (72)Inventor : OISHI MITSUMASA

**(54) MANUFACTURE OF ORGANIC THIN FILM ELECTROLUMINESCENCE DEVICE****(57)Abstract:**

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To enhance adhesion and shorten heating time.

**SOLUTION:** This manufacturing method contains a process for cleaning a transparent insulating substrate 1 on which a transparent electrode circuit is formed by irradiating ultraviolet rays; a process for masking part of the transparent insulating substrate with a protecting mask and treating with a silane coupling agent; a process for removing the protecting mask, heating and drying, then forming an organic thin film EL device; a process for masking part of a sealing cap 7 with a protecting mask same as or having the same shape as the above protecting mask and treating with the silane coupling agent; and a process for removing the protecting mask, heating and drying, then applying an ultraviolet ray curing adhesive 8, and the sealing cap 7 and the transparent insulating substrate 1 are stuck, ultraviolet rays are irradiated to cure the ultraviolet ray curing adhesive 8, and thereby, the transparent insulating substrate 1 and the sealing cap 7 are bonded.

**LEGAL STATUS**

[Date of request for examination] 18.03.1999

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 3028951

[Date of registration] 04.02.2000

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2000-182766

(P2000-182766A)

(43) 公開日 平成12年6月30日 (2000.6.30)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テームト <sup>7</sup> (参考)
H 0 5 B 33/10		H 0 5 B 33/10	3 K 0 0 7
33/04		33/04	
33/14		33/14	A

審査請求 有 請求項の数 7 O L (全 7 頁)

(21) 出願番号 特願平10-358214

(22) 出願日 平成10年12月16日 (1998. 12. 16)

(71) 出願人 000004237

日本電気株式会社

東京都港区芝五丁目7番1号

(72) 発明者 大石 三真

東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株式会社内

(74) 代理人 100086645

弁理士 岩佐 義幸

Fターム(参考) 3K007 AB15 AB18 BA06 BB01 CA01

CB01 DA01 DA02 DB03 EB00

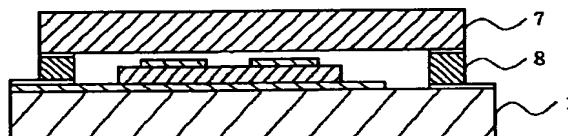
FA01 FA02

(54) 【発明の名称】 有機薄膜エレクトロルミネッセンスデバイスの製造方法

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】 接着性を改善し、加熱時間を短縮する。

【解決手段】 透明電極配線が形成された透明絶縁基板1を紫外線照射により洗浄する工程と、透明絶縁性基板の一部を保護マスクでマスクしてシランカップリング剤で処理する工程と、保護マスクをはずし、加熱し乾燥させた後、有機薄膜EL素子を作製する工程と、封止キャップの一部を上記保護マスクと同一または同一形状の保護マスクでマスクしてシランカップリング剤で処理する工程と、保護マスクをはずし、加熱し乾燥させて、紫外線硬化接着剤8を塗布する工程とを含み、封止キャップ7と透明絶縁基板とを貼り合わせ、紫外線を照射し紫外線硬化接着剤を硬化させることにより、透明絶縁基板と封止キャップとを接着する。



## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】透明電極配線が形成された透明絶縁基板を紫外線照射により洗浄する工程と、

前記透明絶縁性基板の一部を第 1 の保護マスクでマスクしてシランカップリング剤で処理する工程と、

前記第 1 の保護マスクをはずし、加熱し乾燥させた後、有機薄膜エレクトロルミネッセンス素子を作製する工程と、

封止キャップの一部を第 2 の保護マスクでマスクしてシランカップリング剤で処理する工程と、

前記第 2 の保護マスクをはずし、加熱し乾燥させて、紫外線硬化接着剤を塗布する工程と、

を含み、前記封止キャップと前記透明絶縁基板とを貼り合わせ、紫外線を照射し前記紫外線硬化接着剤を硬化させることにより、前記透明絶縁基板と前記封止キャップとを接着することを特徴とする有機薄膜エレクトロルミネッセンスデバイスの製造方法。

【請求項 2】前記第 1 の保護マスクおよび前記第 2 の保護マスクが、同一の保護マスクであることを特徴とする、請求項 1 に記載の有機薄膜エレクトロルミネッセンスデバイスの製造方法。

【請求項 3】前記第 1 の保護マスクおよび前記第 2 の保護マスクが、同一形状の異なる保護マスクであることを特徴とする、請求項 1 に記載の有機薄膜エレクトロルミネッセンスデバイスの製造方法。

【請求項 4】前記第 1 の保護マスクおよび前記第 2 の保護マスクとして、粘着シートを使用することを特徴とする、請求項 1～3 のいずれかに記載の有機薄膜エレクトロルミネッセンスデバイスの製造方法。

【請求項 5】前記封止キャップは、ガラス製の封止ガラスまたは金属製の金属キャップであることを特徴とする、請求項 1～4 のいずれかに記載の有機薄膜エレクトロルミネッセンスデバイスの製造方法。

【請求項 6】前記有機薄膜エレクトロルミネッセンス素子を作製する工程は、

前記第 1 の保護マスクをはずし、加熱し乾燥させ、前記透明絶縁基板の上に前記透明電極配線、前記シランカップリング剤を残す工程と、

前記透明電極配線上に有機化合物薄膜を形成する工程と、

前記有機化合物薄膜の上に導電性金属よりなる陰極を形成する工程と、

を含むことを特徴とする、請求項 1～5 のいずれかに記載の有機薄膜エレクトロルミネッセンスデバイスの製造方法。

【請求項 7】前記シランカップリング剤の乾燥加熱温度は、120～250℃であることを特徴とする、請求項 1～6 のいずれかに記載の有機薄膜エレクトロルミネッセンスデバイスの製造方法。

【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、有機薄膜エレクトロルミネッセンスデバイスの製造方法に関し、特に、接着性を改善した有機薄膜エレクトロルミネッセンスデバイスの製造方法に関する。

## 【0002】

【従来の技術】エレクトロクロミック表示装置において、発光表示体が設けられた基板に背面容器を接着するに際し、接着部をシランカップリング剤を用いて処理する製造方法が特開昭 57-208539 号公報に示されている。この方法は、表示基板上に形成された表示物質の表面にレジスト層を形成し、シランカップリング剤処理を施しレジストを除去することにより表示物質の表面がシランカップリング剤と反応することなく表示基板にシランカップリング剤処理を施すことができる方法である。

【0003】上記方法を有機薄膜エレクトロルミネッセンス (EL) デバイスに応用した場合、有機薄膜 EL デバイスを形成した後、レジスト層を形成し、シランカップリング剤処理を施し熱処理により乾燥させ、アセトンなどの溶剤によりレジストを除去することが考えられる。

【0004】また、液晶表示セルにおいて、基板の接着部分にシラン系カップリング剤を塗布する製造方法が特開昭 58-102925 号公報に記載されている。この公報では周知の従来技術として、フォトレジストをパターンニングし、一対の基板の接着部分にシラン系カップリング剤を塗布し焼成硬化させ、フォトレジスト膜を溶剤により除去し、一方の基板の接着部分にカップリング剤上にシール材を塗布し、両基板を重合してシール材を焼成硬化させ両基板を接着することが記載されている。

【0005】しかし、この従来例では、フォトレジスト膜の剥離除去の際に、カップリング剤の層が剥離溶剤にさらされてダメージを受ける欠点が指摘されている。

【0006】以上の理由から、有機薄膜 EL デバイスにおいて、有機薄膜 EL デバイスを形成する前にフォトレジストをパターンニングし基板の接着部分にシランカップリング剤処理を施し、熱処理し乾燥させ、溶剤によりフォトレジストを除去し、その後有機薄膜 EL デバイスを形成することは容易に考えられる。ただし、フォトレジストの除去の際に、カップリング剤の層が溶剤にさらされてダメージを受けることは回避できない。

【0007】また、有機エレクトロルミネッセンス表示装置 (有機薄膜 EL デバイス) における構成部材を、真空中で加熱し残留水分を除去し、不活性ガス雰囲気で充填された気密空間内で貼り合わせ作業を行うことが特開平 10-233283 号公報に記載されている。しかし、上記有機エレクトロルミネッセンス積層構造体に用いられる有機材料のガラス転移温度が 75～100℃程度であるため、真空中の加熱は、60℃、3 時間程度と

している。

【0008】

【発明が解決しようとする課題】以上説明したように、上述した特開昭58-102925号公報記載の従来例では、フォトリソ膜の剥離除去の際に、カップリング剤の層が剥離溶剤にさらされてダメージを受けるという問題があった。

【0009】また、有機薄膜ELデバイスを形成した後フォトリソのバターンング、シランカップリング剤処理をした場合、レジストを除去するための溶剤により有機材料が溶融するため、レジストの除去はできないという問題があった。

【0010】また、特開平10-233283号公報記載の従来例では、有機薄膜ELデバイスを形成した後、シランカップリング剤の水溶液で処理する場合残留水分を除去するため真空中で加熱する温度は100℃以下である必要があり、これは100℃以上の温度に比べ長い加熱時間を要するという問題があった。

【0011】また、接着剤をシランカップリング剤を用いて処理する方法を有機薄膜エレクトロルミネッセンス・デバイスに適用すると、有機薄膜ELデバイスに使用している有機材料のガラス転移温度が100℃程度であり、シランカップリング剤処理後の熱処理温度が100℃以上であれば、発光特性の劣化を引き起こすという問題があった。

【0012】そこで、本発明の目的は、上記問題の解決のため、接着性を改善した有機薄膜エレクトロルミネッセンスデバイスを提供することにある。

【0013】また、本発明の他の目的は、加熱時間を短縮した有機薄膜エレクトロルミネッセンスデバイスを提供することにある。

【0014】

【課題を解決するための手段】上記目的を達成するために、本発明の有機薄膜エレクトロルミネッセンスデバイスは、透明電極配線が形成された透明絶縁基板を紫外線照射により洗浄する工程と、透明絶縁性基板の一部を第1の保護マスクでマスクしてシランカップリング剤で処理する工程と、第1の保護マスクをはずし、加熱し乾燥させた後、有機薄膜エレクトロルミネッセンス素子を作製する工程と、封止キャップの一部を第2の保護マスクでマスクしてシランカップリング剤で処理する工程と、第2の保護マスクをはずし、加熱し乾燥させて、紫外線硬化接着剤を塗布する工程とを含み、封止キャップと透明絶縁基板とを貼り合わせ、紫外線を照射し紫外線硬化接着剤を硬化させることにより、透明絶縁基板と封止キャップとを接着することを特徴とする。

【0015】また、第1の保護マスクおよび第2の保護マスクが、同一の保護マスクであるのが好ましい。

【0016】さらに、第1の保護マスクおよび第2の保護マスクが、同一形状の異なる保護マスクであるのが好

ましい。

【0017】また、第1の保護マスクおよび第2の保護マスクとして、粘着シートを使用するのが好ましい。

【0018】さらに、封止キャップは、ガラス製の封止ガラスまたは金属製の金属キャップであるのが好ましい。

【0019】また、有機薄膜エレクトロルミネッセンス素子を作製する工程は、第1の保護マスクをはずし、加熱し乾燥させ、透明絶縁基板の上に透明電極配線、シランカップリング剤を残す工程と、透明電極配線上に有機化合物薄膜を形成する工程と、有機化合物薄膜の上に導電性金属よりなる陰極を形成する工程とを含むのが好ましい。

【0020】さらに、シランカップリング剤の乾燥加熱温度は、120～250℃であるのが好ましい。

【0021】以上説明したように、本発明では、ITOが形成されたガラス基板上にEL素子作成予定部をマスクを用いてカバーして接着部分のみをシランカップリング剤で処理してから有機EL素子を積層形成すると共に、上記マスクを用いてキャップにも接着部分にのみシランカップリング剤で処理し、基板とキャップとを接着・封止する技術である。

【0022】また、シランカップリング剤による処理を、有機EL素子の積層形成前に行うことと、基板にシランカップリング剤の処理を行うのに使用したマスクをキャップのシランカップリング剤処理にも使用することを特徴とする。

【0023】このように、有機薄膜ELデバイスを形成する前にフォトリソを用いず保護マスクにより基板の接着部分にシランカップリング剤処理を施し、熱処理し乾燥させ、その後有機薄膜ELデバイスを形成する。また基板と封止キャップとの接着部分は重なるので、接着部分が対称的形状であれば、同一または同一形状の保護マスクを基板と封止キャップとのマスクとして使用できる。

【0024】

【発明の実施の形態】次に、図面を参照して、本発明の実施の形態について詳細に説明する。

【0025】図1～図7は、本発明の有機薄膜EL（エレクトロルミネッセンス）デバイスの製造方法の実施の形態を示す図である。図1、図3～図5、図7は、本発明の製造方法の実施の形態を工程順に示す断面図であり、図2は図1の平面図、図6は図5の平面図である。

【0026】まず、図1、図2に示すように、透明絶縁基板1の上に透明電極配線2を形成する。次に、紫外線を照射して透明絶縁基板1を洗浄した後、一部を保護マスク3によりマスクしてシランカップリング剤4で処理する。

【0027】次に、図3に示すように、保護マスク3をはずし、加熱し乾燥させ、透明絶縁基板1の上には、透

10

20

30

40

50

明電極配線 2、シランカップリング剤 4 が残る。

【0028】次に、図 4 に示すように、透明電極配線 2 上に有機化合物薄膜 5 を形成する。この有機化合物薄膜 5 は、単層または積層構造をし、EL 発光現象を示す。成膜方法は真空蒸着法を用い、シランカップリング剤 4 で処理された透明絶縁基板 1 の表面および透明電極配線 2 の表面には有機化合物薄膜 5 が形成されないようにマスクを用いる。次に、有機化合物薄膜 5 の上に導電性金属よりなる陰極 6 を形成する。陰極 6 の材料は、マグネシウム-銀やマグネシウム-インジウムなど仕事関数の小さい金属合金を用いる。真空蒸着法とマスクを用い、シランカップリング剤 4 で処理した透明絶縁基板 1 の表面および透明電極配線 2 の表面には陰極 6 を形成しない。

【0029】次に、図 5、図 6 に示すように、封止キャップ 7 を基板のシランカップリング剤処理に使用した同一の保護マスク 3 でマスクしてシランカップリング剤 4 で処理する。

【0030】その後、図 7 に示すように、保護マスク 3 をはずし加熱し乾燥させ、封止キャップ 7 に紫外線硬化接着剤 8 を塗布し、透明絶縁基板 1 と貼り合わせる。次に、紫外線を照射し紫外線硬化接着剤 8 を硬化させることにより透明絶縁基板 1 と封止キャップ 7 とを接着し、有機薄膜 EL デバイスを製造する。

【0031】以上説明したように、本発明の実施の形態は、透明電極配線 2 を形成した透明絶縁基板 1 を紫外線照射により洗浄した後、一部を保護マスク 3 によりマスクしてシランカップリング剤 4 で処理し、保護マスク 3 をはずし加熱し乾燥させ、有機薄膜 EL 素子を作製する。その後、封止キャップ 7 の一部を同一保護マスク 3 でマスクしてシランカップリング剤 4 で処理し、保護マスク 3 をはずし加熱し乾燥させ、紫外線硬化接着剤 8 を塗布し封止キャップ 7 と透明絶縁基板 1 を貼り合わせ、紫外線を照射し紫外線硬化接着剤 8 を硬化させることにより透明絶縁基板 1 と封止キャップ 7 とが接着されたことを特徴とする有機薄膜 EL デバイスの製造方法である。

【0032】

【実施例】次に、図面を参照して、本発明の実施例について詳細に説明する。

【0033】図 8～図 14 は、本発明の本発明の有機薄膜 EL デバイスの製造方法の第 1 の実施例を示す図である。図 8、図 10～図 12、図 14 は、本発明の製造方法の第 1 の実施例を工程順に示す断面図であり、図 9 は図 8 の平面図、図 13 は図 12 の平面図である。本実施例では、透明絶縁基板 1 としてガラス基板 1a を用い、封止キャップ 7 として封止ガラス 7a を用いている。

【0034】まず、厚さ 1.1 mm で 200 mm × 200 mm のガラス基板 1a に、インジウム-錫酸化物 (ITO) を 20 nm スパッタし、リソグラフィ技術およ

びウェットエッチングにより透明電極配線 2 を形成する。その後、紫外線によりガラス基板 1a を洗浄する。例えば、酸素を流しながら 100℃ で 10 分間 1000 W の高圧水銀ランプで紫外線を照射する。

【0035】次に、図 8、図 9 に示すように、ガラス基板 1a の一部を保護マスク 3 によりマスクしてシランカップリング剤 4 で処理する。例えば、γ-アミノプロピルトリエトキシシラン 1 重量%水溶液を、保護マスク 3 で覆われていない部分にスピンコーターを用いて塗布する。γ-アミノプロピルトリエトキシシランは、0.5～2.0 重量%水溶液が望ましく、エタノール等の有機溶剤で希釈してもよい。また N-β (アミノエチル) γ-アミノプロピルメチルジメトキシシラン等の他のシランカップリング剤も選択できる。

【0036】次に、図 10 に示すように、保護マスク 3 を取り外し、150℃ で 2 時間加熱し乾燥させる。この加熱は 120～250℃ が望ましく、減圧すると時間を短縮できる。次に、紫外線によりガラス基板 1a を洗浄する。この工程でシランカップリング剤 4 が除去されない程度の洗浄を行う。例えば酸素を流しながら 100℃ で 10 分間 1000 W の高圧水銀ランプで紫外線を照射する。また保護マスク取り付けから加熱乾燥工程までガラス基板 1a の清浄度が保てればこの洗浄工程は不要である。

【0037】次に、図 11 に示すように、真空蒸着により有機化合物薄膜 5 と陰極 6 とを堆積する。有機化合物薄膜 5 は、正孔輸送層 5a として、ジアミン誘導体 (TPD) を 50 nm、発光層および電子輸送層 5b として、トリス (8-キノリノール) アルミニウム (Alq3) を 50 nm 蒸着する。次に、マグネシウムとインジウムとを共蒸着し、原子比 10:1 の合金からなる厚さ 200 nm の陰極 6 を形成する。

【0038】その後、図 12、図 13 に示すように、酸素を流しながら 100℃ で 10 分間 1000 W の高圧水銀ランプで紫外線を照射し、封止ガラス 7a を洗浄する。その後、封止ガラス 7a をガラス基板 1a のシランカップリング剤処理に使用した同一保護マスク 3 でマスクしてシランカップリング剤 4 で処理する。その後、γ-アミノプロピルトリエトキシシラン 1 重量%水溶液を、保護マスク 3 で覆われていない部分にスピンコーターを用いて塗布する。

【0039】次に、図 14 に示すように、保護マスク 3 をはずし、150℃ で 2 時間加熱し乾燥させる。封止ガラス 7a に波長 350 nm の積算光量が 6000 mJ/cm<sup>2</sup> 程度で硬化するエポキシを主成分とする樹脂からなる紫外線により硬化する紫外線硬化接着剤 8 をディスペンサーによって塗布する。次に、ジグを用いてガラス基板 1a と紫外線硬化接着剤 8 を塗布した封止ガラス 7a を位置合わせして貼り合わせる。その後、高圧水銀ランプにより紫外線を照射し、紫外線硬化接着剤 8 の硬化

反応が起き、ガラス基板1aと封止ガラス7aとが接着される。図14は、ジグをはずした様子を示す。なお封止ガラス7aは、図12と上下が反転していることに注意すべきである。

【0040】以上説明したように、本実施例では、シランカップリング剤で処理しているので、透明電極配線2を形成した透明絶縁基板1と、紫外線硬化接着剤8および封止キャップ7との接着性を改善できる。また保護マスク3を使用するため、透明絶縁基板1および封止キャップ7のシランカップリング剤処理が不要な部分にシランカップリング剤4を塗布する必要がないので、シランカップリング剤4の使用量を減らすことができる。

【0041】また、保護マスク3を透明絶縁基板1と封止キャップ7のシランカップリング剤処理に使用することで、保護マスク3が1つで済み、スピンコーター等の塗布装置も透明絶縁基板用と封止キャップ7用と共用できる。

【0042】次に、本発明の第2の実施例について詳細に説明する。

【0043】図15、図16は、本発明の有機薄膜ELデバイスの製造方法の第2の実施例の工程を順に示す断面図である。本発明の第2の実施例では、保護マスク3として粘着シート3a、3bを使用する。

【0044】まず、図15に示すように、ガラス基板1aの一部を第1の粘着シート3aからなる保護マスクによりマスクして、シランカップリング剤4で処理する。

【0045】次に、図16に示すように、封止キャップは金属キャップ7bからなり、第2の粘着シート3bからなる保護マスクによりマスクしてシランカップリング剤4で処理する。紫外線硬化接着剤により基板ガラス1aと金属キャップ7bとを接着する際、紫外線は、ガラス基板1a側から照射する。上記以外は第1の実施例と同様である。なお、第1の粘着シート3aと第2の粘着シート3bとは同一形状である。これらは、一回毎に使い捨ててもよいが、複数回使用しても構わない。また、粘着シート3aは、ガラス基板1aおよび金属キャップ7bの保護マスクとして共用できる。

【0046】さらに、上述した第1、第2の実施例とも、紫外線硬化接着剤は、透明絶縁基板に塗布してもよい。また1枚の透明絶縁基板に複数の有機薄膜ELデバイスを製造する場合にも本発明は適用できる。

【0047】

【発明の効果】以上説明したように、本発明では、有機薄膜ELデバイスを形成する前にフォトリジストを用いず保護マスクにより基板の接着部分にシランカップリング剤処理を施し、熱処理乾燥させ、その後有機薄膜ELデバイスを形成する。従って、接着性を改善できるという効果を奏する。

【0048】また、基板と封止キャップの接着部分は重

なるので、接着部分が対称的形状であれば、同一または同一形状の保護マスクを、基板および封止キャップのマスクとして使用できるという効果を奏する。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の実施の形態の工程を示す断面図である。

【図2】図1の平面図である。

【図3】本発明の実施の形態の工程を示す断面図である。

【図4】本発明の実施の形態の工程を示す断面図である。

【図5】本発明の実施の形態の工程を示す断面図である。

【図6】図5の平面図である。

【図7】本発明の実施の形態の工程を示す断面図である。

【図8】本発明の第1の実施例の工程を示す断面図である。

【図9】図8の平面図である。

【図10】本発明の第1の実施例の工程を示す断面図である。

【図11】本発明の第1の実施例の工程を示す断面図である。

【図12】本発明の第1の実施例の工程を示す断面図である。

【図13】図12の平面図である。

【図14】本発明の第1の実施例の工程を示す断面図である。

【図15】本発明の第2の実施例の工程を示す断面図である。

【図16】本発明の第2の実施例の工程を示す断面図である。

【符号の説明】

1 透明絶縁基板

1a ガラス基板

2 透明電極配線

3 保護マスク

3a 第1の粘着シート

3b 第2の粘着シート

4 シランカップリング剤

5 有機化合物薄膜

5a 正孔輸送層

5b 電子輸送層

6 陰極

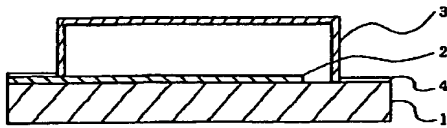
7 封止キャップ

7a 封止ガラス

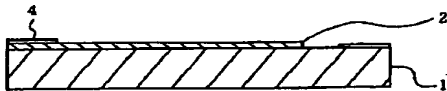
7b 金属キャップ

8 紫外線硬化接着剤

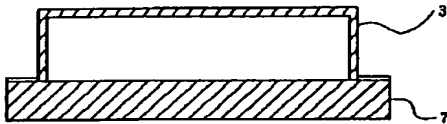
【図1】



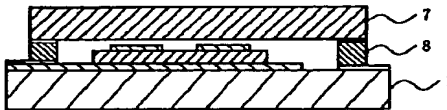
【図3】



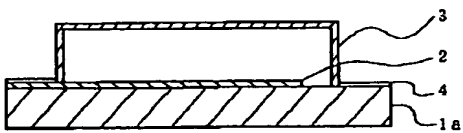
【図5】



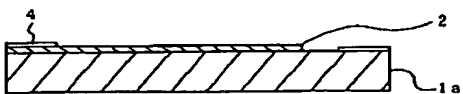
【図7】



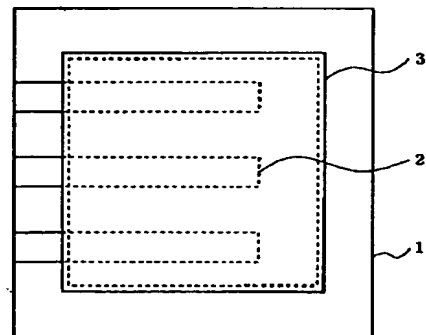
【図8】



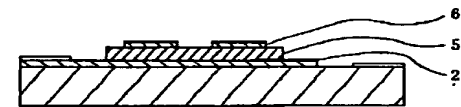
【図10】



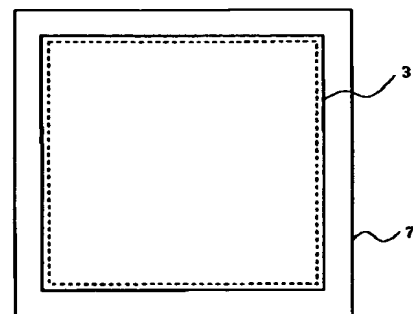
【図2】



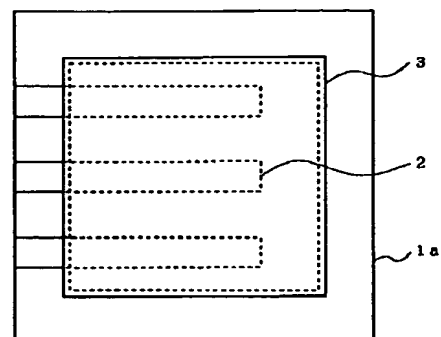
【図4】



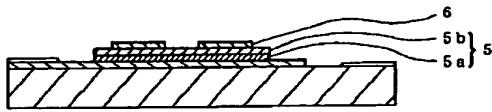
【図6】



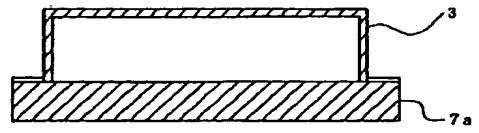
【図9】



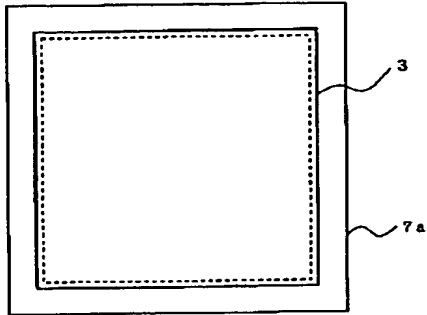
【図11】



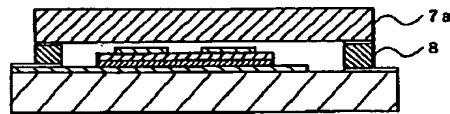
【図12】



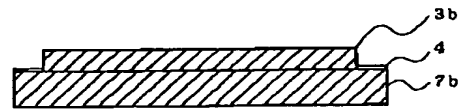
【図13】



【図14】



【図16】



【図15】

